

ФИЗИКА ОПТИЧЕСКИХ КВАНТОВЫХ ГЕНЕРАТОРОВ

УДК 535.33

С. Г. РАУТИАН, Б. М. ЧЕРНОБРОД
(Новосибирск).

**О КООПЕРАТИВНЫХ ЭФФЕКТАХ
В ПРОЦЕССАХ ПРЕОБРАЗОВАНИЯ
СПЕКТРА ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ**

1. За последние несколько лет резко возрос интерес к проблеме преобразования спектра лазерного излучения в газах и парах методами нелинейной спектроскопии и нелинейной оптики. Усиление активности в этой области стимулировано экспериментальной демонстрацией жизнеспособности и практической значимости разнообразных многофотонных процессов для генерации когерентного излучения в некоторых диапазонах длин волн, прежде всего в вакуумно-ультрафиолетовом и в некоторых участках инфракрасного, а также для преобразования инфракрасного излучения в видимое и ультрафиолетовое с целью использования более высокой чувствительности и меньшей инерционности приемников коротковолнового света.

При интерпретации наблюдающихся явлений и при теоретическом предсказании новых большинство авторов основываются на одночастичном приближении, согласно которому различные атомы участвуют в радиационных процессах независимо, так что учет роли ансамбля сводится к умножению величин типа поляризуемостей на концентрацию частиц. При известных условиях такой подход вполне правомерен. Однако во многих случаях, представляющих интерес для обсуждаемой проблемы, интенсивности возбуждающего излучения настолько высоки, что концентрация активных частиц достаточно велика для возникновения кооперативных эффектов. Цель настоящей заметки состоит в том, чтобы обратить внимание на указанное фундаментальное обстоятельство и рассмотреть некоторые типичные проявления кооперативных эффектов в процессах преобразования спектра когерентного излучения.

2. Простейший вид кооперативных эффектов был рассмотрен Дикке [1]. Пусть мы имеем дело с ансамблем из N двухуровневых атомов, полностью возбужденных в начальный момент времени $t=0$ и находящихся в объеме, размеры которого меньше длины испускаемого ими излучения. Атомы ансамбля эффективно взаимодействуют друг с другом через поле своего спонтанного испускания, процесс радиационного спонтанного распада приобретает коллективный характер и в системе развивается «фотонная лавина», интенсивность $I(t)$ которой описывается соотношением

$$I(t) = \frac{1}{2} \gamma N^2 \hbar \omega c h^{-2} ((t - t_0)/\tau); \quad \tau = 2/\gamma N; \quad t_0 = \frac{\tau}{2} \ln \frac{N}{2}, \quad (1)$$

где γ — коэффициент Эйнштейна для спонтанного испускания. Разность заселенностей уровней изменяется по закону

$$N(t) = -N \text{th}((t - t_0)/\tau). \quad (2)$$

Таким образом, поле, испускаемое ансамблем атомов, представляет собой импульс, эффективная длительность которого значительно меньше времени $1/\gamma$ спонтанного высвечивания изолированным атомом (в $N/4$ раз). Максимальное же значение интенсивности достигается по истечении времени $t_0 \gg \tau$ (рис. 1), в момент обращения разности заселенностей в нуль. Можно сказать, что «коллективизация» атомов ансамбля осуществляется на временном интервале $(0, t_0)$, как это наглядно видно из выражения для скорости испускания

$$\gamma_{\text{эф}} \equiv \frac{I(t)}{\hbar\omega \frac{1}{2} [N + N(t)]} = \gamma \frac{\exp 2t/\tau}{1 + (2/N) \exp 2t/\tau}. \quad (3)$$

Согласно (3), в начальный момент времени $\gamma_{\text{эф}}$ совпадает со скоростью спонтанного испускания изолированного атома γ , нарастает по экспоненциальному закону ($N \gg 1$) и при $t = t_0$ достигает значения $\gamma N/4$. На интервале времени $(t_0 - \tau, t_0 + \tau)$ происходит испускание основной части запасенной в ансамбле энергии, в течение того же интервала большая часть атомов переходит из возбужденного состояния в основное, чему и отвечает изменение разности заселенностей $N(t)$ от N до $-N$.

Аналогичное явление имеет место в том случае, когда в начальный момент времени $t = 0$ разность заселенности равна нулю, но система обладает коллективным дипольным моментом $P = Nr$, где r — дипольный момент, наведенный в одном атоме. При таких начальных условиях испускание электромагнитного поля и кинетика заселенности описываются соотношениями (1), (2), в которых следует положить $t_0 = 0$.

Поскольку при кооперативном излучении атомы взаимодействуют с коллективным полем, возникающим в результате интерференции полей от отдельных излучателей, весьма существенной оказывается геометрия объема, в котором находятся атомы. Так, в случае, когда размер занимаемого объема намного больше длины волны испускаемого света, в процесс кооперативного излучения вовлекается только часть атома и количество коллективизированных атомов $N_{\text{эф}}$ зависит от геометрии объема. В случае вытянутого объема, например,

$$N_{\text{эф}} \propto \lambda^2 l n,$$

где λ — длина волны, l — длина объема, n — количество атомов в единице объема. Весьма важно также, помещены ли атомы в резонатор и поле представляет собой стоячие волны или же атомы находятся в открытом пространстве и излучение представляет собой бегущие волны (см. [2]).

В настоящей заметке мы обратим внимание на эффекты, которые могут иметь место в объемах с характерными размерами гораздо больше длины волны и проявятся так или иначе в любой геометрии объема, как ограниченного резонатором, так и в свободном пространстве.

Как показано в работе [3], изложенные результаты в качественной форме имеют отношение к любому процессу испускания бозонов, если излучатели взаимодействуют через создаваемое ими поле. Изменениям подвержены лишь конкретные связи величин $(\tau), t_0$ с атомными характеристиками. В случае, например, комбинационного рассеяния [4], происходящего по схеме рис. 2, а, импульс стоксового излучения на частоте ω_s также описывается

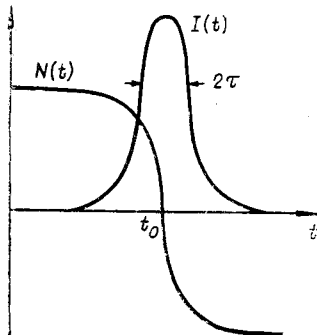


Рис. 1.

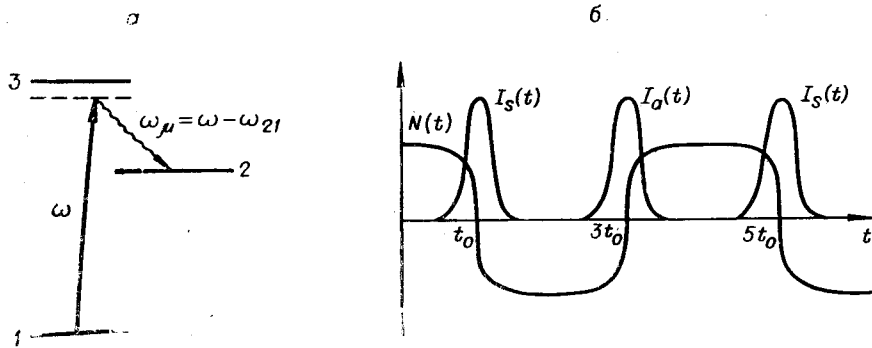


Рис. 2.

соотношениями (1), (2), но τ дается выражением

$$\tau = 2 / (\gamma_{\text{кр}} N_{\text{эф}}). \quad (4)$$

Здесь

$$\gamma_{\text{кр}} = \gamma_{32} |G_{31} / \Omega_{31}|^2; \quad \Omega_{31} = \omega - \omega_{21}; \quad G_{31} = d_{31} E / (2\hbar), \quad (5)$$

где d_{31} — матричный элемент дипольного момента для перехода 3—1; E , ω — амплитуда поля и частота возбуждающего излучения. Таким образом, роль вероятности спонтанного испускания γ играет теперь вероятность спонтанного комбинационного рассеяния $\gamma_{\text{кр}}$.

В случае многоуровневых систем и многофотонных процессов кооперативные эффекты приобретают качественно новые черты, которые легко усматриваются на примере комбинационного рассеяния. Из соотношения (2) следует, что при $t \geq t_0 + \tau$ практически все атомы переведены в состояние 2. Если релаксация этого состояния достаточно медленная, а возбуждающее излучение продолжает действовать на ансамбль, должна, очевидно, формироваться «лавина» антистоксового рассеяния (частота $\omega_a = \omega + \omega_{21}$), сопровождающаяся обратным переходом атомов из состояния 2 в состояние 1. Теоретический анализ вопроса оказывается наиболее простым при равенстве вероятностей стоксового и антистоксового спонтанного испускания, что характерно, например, для нерезонансного рассеяния. В этом случае кооперативное комбинационное рассеяние может быть описано эллиптическими функциями Якоби, причем в предельном случае $N_{\text{эф}} \gg 1$ имеет место чередование импульсов стоксового и антистоксового рассеяния и соответствующие переходы атомов 1—2 и 2—1 (см. рис. 2, б). Расстояние между импульсами равно $2t_0$, полный период — $4t_0$. Длительности импульсов по-прежнему равны 2τ , где τ определяется соотношением (4).

Эквидистантность стоксовых и антистоксовых импульсов так же, как и равенство их ширины и максимальных интенсивностей, специфична, разумеется, для случая нерезонансного комбинационного рассеяния или случайного совпадения вероятностей спонтанного стоксового и антистоксового испускания. Однако сам факт чередования стоксового и антистоксового кооперативного рассеяния имеет более общий характер. Физическая причина такого последовательного чередования связана с относительной кратковременностью перехода основной части атомов из начального состояния в конечное и с большой длительностью процесса «коллективизации» их. Длительность «раскачки» фотонной лавины эффективно «развязывает» два последовательных импульса, делает их, по существу, независимыми. Таким образом, образование последователь-

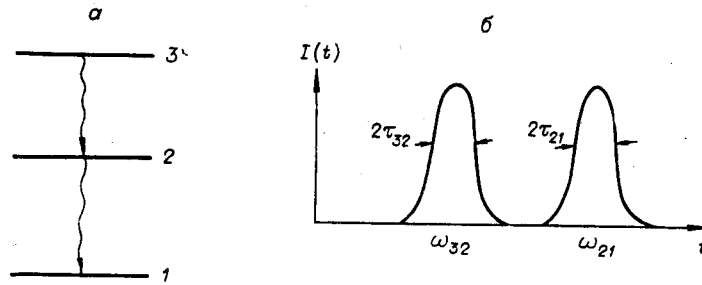


Рис. 3.

ности стоксовых и антистоксовых импульсов должно происходить и в случае резонансного рассеяния, когда, как правило, вероятности стоксового и антистоксового спонтанного испускания различны.

Напомним, что условием применимости изложенных представлений является достаточная медленность релаксационных процессов в сравнении с длительностью кооперативного спонтанного испускания. Кроме того, длина ансамбля атомов l должна быть не слишком велика:

$$l < \tau c, \quad (6)$$

чтобы за время высвечивания τ излучение успевало распространиться на расстояние l . Из соотношения (6) можно получить максимально большое значение $N_{\text{эф}}$ и минимальную длительность импульса кооперативного испускания τ_{min} :

$$\tau_{\text{min}} = \sqrt{l / (\gamma \lambda^2 n c)}. \quad (7)$$

При больших размерах ансамбля атомов существенное значение приобретают процессы вынужденного испускания и эволюция системы подчиняется другим законам (см., например, [5]).

3. Кооперативные эффекты, аналогичные описанным выше, могут иметь место и во многих других радиационных процессах (при выполнении соответствующих условий), причем основные качественные особенности явлений легко предсказать на базе результатов, полученных для испускания двухуровневыми атомами и для комбинационного рассеяния света. В качестве первого примера рассмотрим каскадный распад трехуровневой системы (рис. 3, а). Пусть в начальный момент времени $t=0$ все атомы находятся в состоянии 3. По истечении времени

$$t_0^{(32)} = \frac{1}{\gamma_{32} N} \ln \frac{N_{\text{эф}}}{2} \quad (8)$$

произойдет полная коллективизация атомов и сформируется импульс кооперативного спонтанного испускания на переходе 3—2 с длительностью

$$\tau_{32} = 2 / (\gamma_{32} N_{\text{эф}}). \quad (9)$$

В результате указанного этапа распада происходит заселение состояния 2, после чего начнется формирование фотонной лавины на переходе 2—1. Если коэффициенты Эйнштейна γ_{32} и γ_{21} одинаковы, то ситуация аналогична таковой при нерезонансном комбинационном рассеянии и второй импульс с частотой ω_{21} сформируется ко времени $t = 2t_0^{32}$ и будет иметь длительность, определяемую соотношением (9). При $\gamma_{32} \neq \gamma_{21}$ момент испускания второго импульса будет несколько иным, но длительность его определяется величиной $\tau_{21} = 2 / (\gamma_{21} N_{\text{эф}})$.

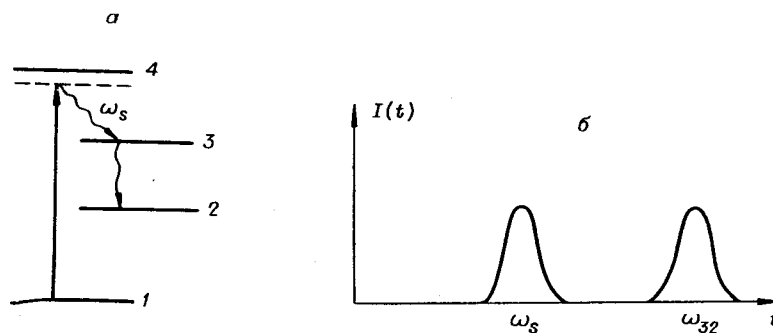


Рис. 4.

Таким образом, согласно изложенным выше представлениям, процесс каскадного кооперативного распада трехуровневой системы происходит в два этапа; на протяжении каждого образуется короткий импульс спонтанного излучения (см. рис. 3, б). Если состояние 1 не является основным или метастабильным и способно распадаться на состояния с меньшей энергией, возможно появление третьего, четвертого и других импульсов.

Следующий пример можно рассматривать как суперпозицию случаев комбинационного рассеяния и каскадного распада (рис. 4, а, б). Возбуждающее излучение с частотой ω_{41} взаимодействует с переходом 1—4, комбинационно рассеивается, обуславливая возникновение кооперативного стоксового импульса с частотой $\omega_s = \omega - \omega_{31}$. В результате этого этапа атомы оказываются в состоянии 3. Дальнейшее течение процесса зависит от соотношения вероятностей спонтанного испускания на переходе 3—2 и вероятности спонтанного антистоксового рассеяния возбуждающего излучения (обратный переход атомов 3—1). Если более вероятен второй процесс, возвращаемся к рассмотренному выше случаю антистоксового кооперативного рассеяния. Если же более вероятен спонтанный переход 3—2, после стоксового кооперативного импульса появится импульс спонтанного излучения на переходе 3—2, т. е. на втором этапе имеем аналог каскадного распада.

Только что разобранный пример выявляет новое обстоятельство, характерное для многоуровневых систем, а именно конкуренцию различных процессов. В чистом виде этот фактор выступает в случае комбинационного рассеяния через нижнее состояние и в двухквантовой люминесценции (рис. 5, а, б). Пусть в начальный момент времени заселено состояние 3 и ансамбль атомов взаимодействует с внешним полем частоты ω , показанным на рис. 5 прямой стрелкой. Если интенсивность внешнего поля не слишком велика ($|G/\Omega|^2 \ll 1$), то вероятности одноквантовых переходов больше, чем двухквантовых, и должны возникать импульсы кооперативного спонтанного распада на переходах 3—1 и 3—2 соответственно для случаев рис. 5, а и б. Таким образом, при указанных условиях конкуренция решается в пользу одного из каналов, так как более вероятный процесс использует по своему каналу запасенную в системе энергию. Если же $|G/\Omega| \gg 1$, то ступенчатые и многофотонные переходы неотличимы и вопрос требует дополнительного анализа.

Интересен случай, отвечающий схеме 5, в, когда внешнее сильное поле взаимодействует с верхним переходом каскада в отличие от рис. 5, б, где внешнее поле резонансно нижнему переходу. В случае схемы рис. 5, в вероятность спонтанной двухфотонной люминесценции равна $\gamma_{21} |G_{32}/\Omega_{32}|^2$, и эта величина может оказаться больше, чем γ_{32} , даже при выполнении условия $|G_{32}/\Omega_{32}| \gg 1$. Таким образом, в данном

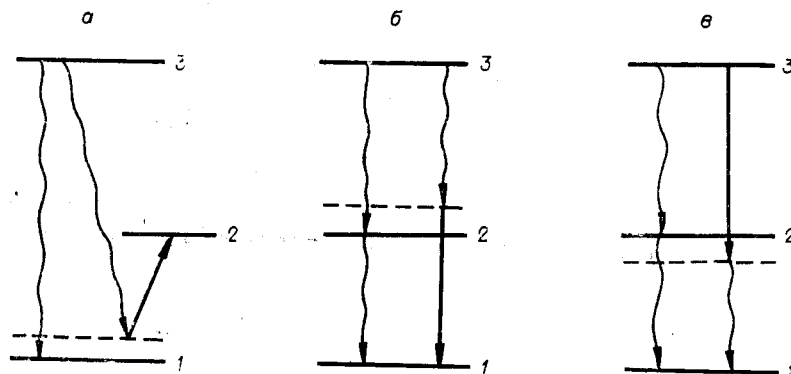


Рис. 5.

случае может реализоваться как каскадный распад системы, так и распад по каналу кооперативной двухфотонной люминесценции.

Третий пример, расширяющий рамки применения представлений о кооперативных процессах, соответствует гиперкомбинационному рассеянию, т. е. комбинационному рассеянию при многофотонном возбуждении. В этом случае можно пользоваться выводами, относящимися к комбинационному рассеянию, но в соотношениях (4), (5) величину $\gamma_{кр}$ следует заменить на вероятность спонтанного гиперкомбинационного рассеяния.

Остановимся, наконец, на ситуации, когда начальное и конечное состояния многофотонного процесса совпадают. Можно иметь в виду, например, схему рис. 6, отвечающую многочисленным исследованиям радиационных процессов в парах калия и других щелочных металлов. В этом случае происходит двухфотонное возбуждение комбинационного рассеяния с частотой $\omega_s = \omega_1 + \omega_2 - \omega_{32}$ (частоты ω_1, ω_2 возбуждающего излучения могут быть равными) и последующий распад состояния 3 в исходное состояние 1. На первом этапе может возникнуть импульс кооперативного спонтанного гиперкомбинационного рассеяния и атомы окажутся в состоянии 3. Тем самым на переходе 3—1 создается инверсная заселенность и второй этап может быть сопряжен с образованием импульса кооперативного спонтанного испускания, в результате которого атомы оказываются переведенными в исходное состояние 1. В дальнейшем процесс может циклически повторяться. В этом плане рассматриваемый случай аналогичен нерезонансному комбинационному рассеянию (см. рис. 2), когда атомы последовательно переходят из состояния 1 в состояние 2 и обратно.

4. Приведем результаты некоторых числовых оценок. Для проявления кооперативного эффекта необходимо, чтобы время излучения τ было короче времени сбоя атомной фазы T_2 .

При рассеянии в газе, когда форма линии определяется эффектом Доплера, роль T_2 играет обратная доплеровская ширина линии $T_2^* = 1/k\bar{v}_z$, где k — волновое число \bar{v}_z — проекция среднетепловой скорости атомов. Из условия $\tau < T_2$ можно оценить плотность частиц, при которой начинает проявляться кооперативный эффект

$$\tau = \sqrt{1/(\gamma_p n \lambda^2 c)} \leq T_2,$$

где γ_p — вероятность спонтанного рассеяния. Для числовых значений $\gamma_p = 10^7 \text{ с}^{-1}$, $\lambda = 0,5 \text{ мкм}$, $T_2 = 10^{-9} \text{ с}$ находим $n \geq 1,3 \times$

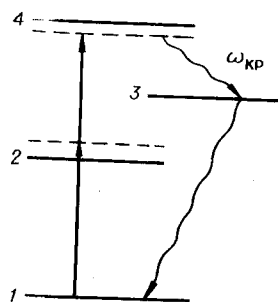


Рис. 6.

$\times 10^9 \text{ см}^{-3}$, что составляет всего 10^{-7} тор при комнатной температуре.

Необходимую интенсивность возбуждающего излучения оценим для двух процессов преобразования комбинационного и гиперкомбинационного рассеяния (КР и ГКР). В случае КР

$$\gamma = \gamma_{32} |G_{13}/\Omega|^2,$$

причем предполагается выполнение условия $|G_{13}/\Omega| < 1$. Если $\gamma_{32} = \gamma_{13} = 10^8 \text{ с}^{-1}$, $|G_{13}/\Omega|^2 = 0,1$, $\Omega = 0,1 \text{ см}^{-1}$, то необходимая интенсивность равна $I_0 = 1,4 \text{ кВт}$, в случае $\Omega \sim 10 \text{ см}^{-1}$ $I_0 = 14 \text{ МВт}$. Величина γ_p для ГКР дается формулой

$$\gamma_p = \gamma_{43} |G_{12}/\Omega_1|^2 |G_{24}/\Omega_2|^2.$$

При условии $\gamma_{43} \sim \gamma_{12} \sim \gamma_{24} = 10^8 \text{ с}^{-1}$ и $\Omega_1 = \Omega_2$ для интенсивности возбуждающего излучения имеем при $\Omega_{1,2} = 0,1 \text{ см}^{-1}$ $I_0 = 4,2 \text{ кВт}$, в случае $\Omega_{1,2} = 10 \text{ см}^{-1}$ $I_0 = 42 \text{ МВт}$.

При достижении необходимой плотности атомов и интенсивности возбуждающего излучения длительность импульсов рассеяния порядка T_2 . При повышении плотности атомов и интенсивности возбуждающего излучения длительность импульсов рассеяния будет сокращаться. Так, при достижении плотностью атомов величины $n \sim 10^{16} \text{ см}^{-3}$ и при значении параметров $\gamma_p \sim 10^7 \text{ с}^{-1}$, $\lambda \sim 0,5 \text{ мкм}$ длительность импульсов рассеяния $\tau \sim 10^{-12} \text{ с}$. При этом максимальная длина кооперации есть $l = c\tau \sim 3 \cdot 10^{-2} \text{ см}$.

Отметим, что в случае КР доплеровские ширины линий рассеяния вдоль и против направления распространения сильного поля отличаются и даются соответственно выражениями $|k_0 - k_{\text{КРz}}| \bar{v}_z$ и $|k_0 + k_{\text{КРz}}| \bar{v}_z$. Для комбинирующих уровней, достаточно близко расположенных по энергиям, величина $|k_0 - k_{\text{КРz}}|/k_{\text{КРz}}$ может быть существенно меньше единицы. Так, при $|(E_1 - E_2)/\hbar| \sim 1000 \text{ см}^{-1}$, $k_{\text{КР}} \sim 10^5 \text{ см}^{-1}$ мы имеем $|k_0 - k_{\text{КРz}}|/|k_{\text{КРz}}| \sim 10^{-2}$. Это обстоятельство позволяет снизить необходимые давление газа и интенсивности возбуждающего излучения, а также перейти от наносекундного временного масштаба к микросекундному.

5. Рассмотренные выше общие свойства кооперативных эффектов и числовые оценки наглядно показывают, что во многих случаях преобразования спектра когерентного излучения могут реализоваться условия для формирования коротких импульсов излучения, обусловленных «коллективизацией» атомов. Возникновение таких импульсов должно быть скорее правилом, чем исключением. В этой связи, естественно, напрашивается вопрос о физическом смысле используемого одночастичного подхода и получаемых с его помощью квазистационарных режимов. Дело в том, что, согласно приведенному выше, преобразование спектра возбуждающего излучения имеет сугубо импульсный характер, по крайней мере, в течение некоторого времени после включения внешнего поля. Можно сказать, что кооперативные эффекты обуславливают своеобразную инерционность квазистационарных режимов.

Важнейшим последствием кооперативных эффектов является уширение спектра преобразованного излучения. Спектр простейшего импульса Дикке (1) дается выражением

$$I(\omega) = I_0 \left(\frac{\pi\tau}{2} \right)^2 \text{sech}^2 \frac{\pi\tau\omega}{2}. \quad (10)$$

Его ширина

$$\Delta\omega \sim 1/\tau, \quad (11)$$

и в соответствии с основным условием образования кооперативного импульса ширина его спектра значительно превышает ширину линии спонтанного испускания изолированных атомов.

В некоторых приложениях такое уширение спектра не представляет опасности. При визуализации, например, инфракрасных объектов с последующей фотографической регистрацией излучение с шириной спектра в см^{-1} или несколько см^{-1} (чему отвечает $\tau \sim 10^{-11}$ с) может рассматриваться как монохроматическое и во внимание следует принимать лишь возможные отступления от закона взаимозаместимости. Если же речь идет о преобразовании излучения с целью исследования его спектрального состава, то кооперативные эффекты будут играть роль искажающего аппаратурного фактора.

Аппаратурно-измерительные аспекты кооперативных явлений выступают на передний план и при исследовании временных характеристик преобразуемого излучения. Кроме того, следует считаться и с возможностью повреждения деталей оптических приборов вследствие значительного увеличения мгновенных значений мощности в сравнении со случаем квазистационарного преобразования.

В настоящее время проблема кооперативных эффектов при преобразовании спектра излучения в многофотонных процессах требует прежде всего постановки экспериментальных исследований с особым вниманием к изучению временных и спектральных характеристик.

Современное состояние проблемы кооперативных эффектов при преобразовании спектра излучения в многофотонных процессах можно охарактеризовать как теоретико-гипотетическое. Дело в том, что при огромном количестве теоретических работ, исчисляемом по меньшей мере десятками, экспериментальные исследования, по существу, отсутствуют. Частично такое положение связано с трудностями изучения быстротекающих процессов. Однако главная причина, как нам кажется, состоит в недооценке ряда важных прикладных аспектов.

Одно из наиболее перспективных применений будет заключаться в изменении характеристик преобразуемого излучения: пространственных, временных, спектральных, поляризационных и других. Например, пусть преобразуемый импульс удовлетворяет условию кооперативного рассеивания, т. е. поле в нем нарастает до критической величины за времена, более короткие, чем характерное время некогерентного рассеяния. В результате рождается импульс кооперативного рассеяния, который может быть на много порядков короче преобразуемого импульса.

ЛИТЕРАТУРА

1. Dicke R. H. Coherence in spontaneous radiation processes.— "Phys. Rev"., 1954, vol. 93, N 1, p. 99.
2. MacGillivray J. C., Feld M. S. Theory of superradiance in an extended, optically thick medium.— "Phys. Rev. A", 1976, vol. 14, N 3, p. 1169.
3. Нагибаров В. Р., Копыллем У. Х. Сверхизлучение бозонной лавины.— ЖЭТФ, 1968, т. 54, № 1, с. 312.
4. Раутиан С. Г., Черноброд Б. М. Кооперативный эффект в комбинационном рассеянии света. Препринт. Новосибирск, изд. ИФП СО АН СССР, 1976; ЖЭТФ, 1977, т. 72, с. 1342.
5. Su J. Y. Pulse propagation and superradiance. P. I, II.— "Nuovo Cimento", 1975, vol. 25B, p. 59; 1976, vol. 33B, p. 635.

Поступила в редакцию 16 марта 1978 г.